

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2016年8月4日(04.08.2016)



(10) 国際公開番号
WO 2016/121790 A1

- (51) 国際特許分類:
H01F 41/02 (2006.01) *C22C 38/00* (2006.01)
B22F 3/24 (2006.01) *H01F 1/057* (2006.01)
C21D 6/00 (2006.01) *H01F 1/08* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2016/052262
- (22) 国際出願日: 2016年1月27日(27.01.2016)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2015-013112 2015年1月27日(27.01.2015) JP
- (71) 出願人: 日立金属株式会社(HITACHI METALS, LTD.) [JP/JP]; 〒1088224 東京都港区港南一丁目2番70号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 國吉 太(Kuniyoshi Futoshi); 〒6180013 大阪府三島郡島本町江川2-15-17 日立金属株式会社磁性材料研究所内 Osaka (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA,

BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

- 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING R-T-B SINTERED MAGNET

(54) 発明の名称: R-T-B系焼結磁石の製造方法

(57) Abstract: [Problem] To provide a method for producing an R-T-B sintered magnet, having an excellent H_{cj} temperature coefficient, a minimal drop in H_{cj} at high temperatures, and with which it is possible to obtain a high H_{cj} . [Solution] A method for producing an R-T-B sintered magnet, comprising: a step in which an R-T-B sintered magnet material containing 29.5-35.0 mass% R, 0.80-0.90 mass% B, 0.1-0.8 mass% Ga, 0-2 mass% M, with the remainder being made up of T and unavoidable impurities is prepared; an RH diffusion step in which an RH diffusion source containing the heavy rare earth element RH and the R-T-B sintered magnet material are heated, and the heavy rare earth element RH is diffused in the R-T-B sintered magnet material from the RH diffusion source; a high-temperature heat-treatment step in which the R-T-B sintered magnet which has been subjected to the RH diffusion step is heated to a high temperature of 730-1020°C, and subsequently cooled to 300°C at a rate of at least 5°C/minute; and a low-temperature heat-treatment step in which the R-T-B sintered magnet having undergone the high-temperature heat-treatment step is heated to a temperature of 440-550°C.

(57) 要約: 【課題】 H_{cj} の温度係数に優れ、高温において H_{cj} の低下が少なく、且つ、高い H_{cj} を得ることができる R-T-B 系焼結磁石の製造方法を提供すること。 【解決手段】 R: 29.5~35.0 質量%、B: 0.80~0.90 質量%、Ga: 0.1~0.8 質量%、M: 0~2 質量%、残部 T 及び不可避免的不純物を含有する R-T-B 系焼結磁石素材を準備する工程と、重希土類元素 RH を含む RH 拡散源と、前記 R-T-B 系焼結磁石素材とを加熱し、前記 RH 拡散源から前記 R-T-B 系焼結磁石素材に重希土類元素 RH を拡散させる RH 拡散工程と、前記 RH 拡散工程後の R-T-B 系焼結磁石を 730~1020°C の温度に加熱後、5°C/分以上で 300°C まで冷却する高温熱処理工程と、前記高温熱処理工程後の R-T-B 系焼結磁石を 440~550°C の温度に加熱する低温熱処理工程と、を含む R-T-B 系焼結磁石の製造方法。

WO 2016/121790 A1

明 細 書

発明の名称： R－T－B系焼結磁石の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、R－T－B系焼結磁石の製造方法に関する。

背景技術

[0002] R－T－B系焼結磁石（Rは希土類元素のうち少なくとも一種であり、Ndを必ず含む、Tは遷移金属元素のうち少なくとも一種でありFeを必ず含む）は、 $R_2T_{14}B$ 型結晶構造を有する化合物からなる主相と、この主相の粒界部分に位置する粒界相とから構成されており、永久磁石の中で最も高性能な磁石として知られている。

[0003] このため、ハードディスクドライブのボイスコイルモータ（VCM）、電気自動車（EV、HV、PHV）用モータ、産業機器用モータなどの各種モータや家電製品など多種多様な用途に用いられている。

[0004] このように用途が広がるにつれ、例えば電気自動車用モータは、 100°C ～ 160°C のような高温下に曝される場合があり、このような高温下においても安定した動作が要求されている。

[0005] しかし、R－T－B系焼結磁石は、高温になると保磁力 H_c 」（以下、単に「 H_c 」）と記載する場合がある）が低下し、不可逆熱減磁が起こるという問題がある。よって、電気自動車用モータにR－T－B系焼結磁石が使用される場合、高温により H_c が低下し、モータの安定した動作が得られない恐れがある。そのため、高温における H_c の低下が少ない、すなわち、 H_c の温度係数に優れたR－T－B系焼結磁石が求められている。

[0006] 特許文献1には、 R_1 （Y、Ceを含まない希土類元素の少なくとも一種）－T－B系結晶層と（Y、Ce）－T－B系結晶層を積層させることにより、 H_c の温度係数が改善されることが記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：特開2014-216462

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] しかし、特許文献1に記載の方法では、R1-T-B系結晶層と(Y、Ce)-T-B系結晶層とをスパッタリング等により積層しなければならないため、コストがかかるとともに、量産が困難である。また、(Y、Ce)-T-B系結晶層を含有していたため、異方性磁界の低下が避けられず、高い H_c を得ることができない。

[0009] 本発明は、上記問題を解決するためになされたものであり、その目的は、 H_c の温度係数に優れ、高温において H_c の低下が少なく、且つ、高い H_c を得ることができるR-T-B系焼結磁石の製造方法を提供することである。

課題を解決するための手段

[0010] 請求項1に記載の本発明のR-T-B系焼結磁石の製造方法は、
R：29.5～35.0質量％（Rは希土類元素の少なくとも一種でありNdを必ず含む）、
B：0.80～0.90質量％、
Ga：0.1～0.8質量％、
M：0～2質量％（MはCu、Al、Nb、Zrの少なくとも一種）、
残部T（Tは遷移金属元素の少なくとも一種でありFeを必ず含み、Feの10％以下をCoで置換できる）及び不可避免的不純物を含有するR-T-B系焼結磁石素材を準備する工程と、
重希土類元素RH（RHは、Dy及び／又はTb）を含むRH拡散源と、
前記R-T-B系焼結磁石素材とを加熱し、前記RH拡散源から前記R-T-B系焼結磁石素材に重希土類元素RHを拡散させるRH拡散工程と、
前記RH拡散工程後のR-T-B系焼結磁石を730～1020℃の温度に加熱後、5℃／分以上で300℃まで冷却する高温熱処理工程と、
前記高温熱処理工程後のR-T-B系焼結磁石を440～550℃の温度

に加熱する低温熱処理工程と、を含むことを特徴とする。

[0011] 請求項2に記載の本発明は、請求項1に記載のR-T-B系焼結磁石の製造方法において、MはCuを必ず含み、Cu：0.05～0.30質量%であることを特徴とする。

[0012] 請求項3に記載の本発明は、請求項1又は2に記載のR-T-B系焼結磁石の製造方法において、R：30.0～34.0質量%であることを特徴とする。

[0013] 請求項4に記載の本発明は、請求項1から3のいずれかに記載のR-T-B系焼結磁石の製造方法において、B：0.82～0.88質量%であることを特徴とする。

[0014] 請求項5に記載の本発明は、請求項1から4のいずれかに記載のR-T-B系焼結磁石の製造方法において、Ga：0.2～0.8質量%であることを特徴とする。

[0015] 請求項6に記載の本発明は、請求項1から5のいずれかに記載のR-T-B系焼結磁石の製造方法において、前記高温熱処理工程は、前記RH拡散工程後のR-T-B系焼結磁石を730～1020℃の温度に加熱後、15℃/分以上で300℃まで冷却することを特徴とする。

発明の効果

[0016] 本発明により、 H_{cJ} の温度係数に優れ、高温において H_{cJ} の低下を少なく、かつ、高い H_{cJ} を得ることができるR-T-B系焼結磁石の製造方法を提供することができる。

発明を実施するための形態

[0017] 本発明者は、特定組成のR-T-B系焼結磁石素材に対し、高い H_{cJ} を得るために従来から行われている手法であるRH拡散源からR-T-B系焼結磁石素材に重希土類元素RHを拡散させるRH拡散工程を行った後に、730～1020℃の温度に加熱後、5℃/分以上で300℃まで冷却を行う高温熱処理工程と、440～550℃の温度に加熱する低温熱処理工程を行うことにより、 H_{cJ} の温度係数が改善され、例えば140℃のような高温にお

いて、 H_{cJ} の低下を少なく、高い H_{cJ} を発現するR-T-B系焼結磁石が得られることを見出し、本発明に至ったものである。すなわち、本発明は、特定組成のR-T-B系焼結磁石素材と前記RH拡散工程と前記高温熱処理工程と前記低温熱処理工程の全ての条件を満たした場合に H_{cJ} の温度係数が改善され、高温において、 H_{cJ} の低下を少なく、高い H_{cJ} を発現するR-T-B系焼結磁石を得ることができる。

[0018] なお、本発明において、前記RH拡散源から重希土類元素RHを拡散する前のR-T-B系焼結磁石を「R-T-B系焼結磁石素材」といい、RH拡散後のR-T-B系焼結磁石を「R-T-B系焼結磁石」という。

[0019] [R-T-B系焼結磁石素材を準備する工程]

R-T-B系焼結磁石素材が以下に詳述する組成となるようにそれぞれの元素の金属又は合金（溶解原料）を準備し、ストリップキャスティング法等によりフレーク状の原料合金を作製する。次に、前記フレーク状の原料合金から合金粉末を作製する。そして、合金粉末を成形して成形体を得る。得られた成形体を焼結することによりR-T-B系焼結磁石素材を準備する。

[0020] 合金粉末の作製、合金粉末の成形および成形体の焼結は、一例として以下のようにして行う。

得られたフレーク状の原料合金を水素粉砕し、例えば1.0mm以下の粗粉砕粉を得る。次に、粗粉砕粉を不活性ガス中でジェットミル等により微粉砕し、例えば粒径 D_{50} （気流分散式レーザー回折法による測定で得られる体積中心値（体積基準メジアン径））が3～5 μm の微粉砕粉（合金粉末）を得る。合金粉末は、1種類の合金粉末（単合金粉末）を用いてもよいし、2種類以上の合金粉末を混合することにより合金粉末（混合合金粉末）を得る、いわゆる2合金法を用いてもよく、公知の方法などを用いて本発明の組成となるように合金粉末を作製すればよい。

ジェットミル粉砕前の粗粉砕粉、ジェットミル粉砕中およびジェットミル粉砕後の合金粉末に助剤として公知の潤滑剤を添加してもよい。次に得られた合金粉末を磁界中で成形し、成形体を得る。成形は、金型のキャビティー

内に乾燥した合金粉末を挿入し、成形する乾式成形法、および金型のキャビティー内に合金粉末を含むスラリーを注入し、スラリーの分散媒を排出し、残った合金粉末を成形する湿式成形法を含む公知の任意の成形方法を用いてよい。

[0021] 成形体を焼結することによりR-T-B系焼結磁石素材を得る。成形体の焼結は公知の方法を用いることができる。なお、焼結時の雰囲気による酸化を防止するために、焼結は真空雰囲気中又は不活性ガス雰囲気中で行うことが好ましい。不活性ガスは、例えばヘリウム又はアルゴン等を用いることが好ましい。

[0022] 次に、R-T-B系焼結磁石素材の組成について説明する。

本発明に係るR-T-B系焼結磁石素材の組成は、

R : 29.5 ~ 35.0 質量% (Rは希土類元素の少なくとも一種でありNdを必ず含む)、

B : 0.80 ~ 0.90 質量%、

Ga : 0.1 ~ 0.8 質量%、

M : 0 ~ 2 質量% (MはCu、Al、Nb、Zrの少なくとも一種)

残部T (Tは遷移金属元素の少なくとも一種でありFeを必ず含み、Feの10%以下をCoで置換できる)

および不可避免的不純物を含有する。

本発明はR量、B量、Ga量をそれぞれ前記のような範囲にした上で、後述するRH拡散工程、高温熱処理工程、低温熱処理工程を行うことによりH_{cj}の温度係数に優れ、高温において、H_{cj}の低下を少なく、かつ、高いH_{cj}を発現するR-T-B系焼結磁石を得ることができる。

[0023] Rは、希土類元素のうち少なくとも一種でありNdを必ず含む。Nd以外の希土類元素としてはPrがあげられる。さらに少量のDy、Tb、GdおよびHoのうち少なくとも一種を含有してもよく、その含有量はR-T-B系焼結磁石全体の5質量%以下であることが好ましい。Rの含有量は、29.5 ~ 35.0 質量%である。Rが29.5 質量%未満であると、焼結時の

緻密化が困難になる恐れがあり、35.0質量%を超えると、主相比率が低下して高い B_r を得ることができない恐れがある。Rの含有量は好ましくは30.0～34.0質量%である。より高い B_r を得ることが出来るからである。

[0024] Bの含有量は、0.80～0.90質量%である。Bが0.80質量%未満であると、 R_2T_{17} 相が生成されて高い H_{cJ} が得られず、0.90質量%を超えると、後述するRH拡散工程、高温熱処理工程、低温熱処理工程を行っても、温度係数を改善することができず、高温において高い H_{cJ} を得ることができない。Bの含有量は、好ましくは、0.82～0.88質量%である。より優れた温度係数を得ることができるからである。

[0025] Gaの含有量は、0.1～0.8質量%である。R、Bを上記範囲内とし、さらにGaの含有量を0.1～0.8質量%とすることにより、主相の粒界部分に位置する粒界相にR-T-Ga相およびR-Ga相を生成させて高い H_{cJ} を得ることができる。ここで、R-T-Ga相とは、R：15質量%以上65質量%以下、T：20質量%以上80質量%以下、Ga：2質量%以上20質量%以下を含むものであり、例えば $La_6Co_{11}Ga_3$ 型結晶構造を有する $R_6Fe_{13}Ga$ 化合物が挙げられる。なお、R-T-Ga相は前述のR、T及びGa以外の他の元素を含んでもよく、例えばAl及びCu等から選択される1つ以上の元素が挙げられる。また、R-Ga相とはR70質量%以上95質量%以下、Ga5質量%以上30質量%以下、Fe20質量%以下（0を含む）を含むものであり、例えば R_3Ga 化合物が挙げられる。

[0026] Gaの含有量が0.1質量%未満であると、R-T-Ga相およびR-Ga相の生成量が少なすぎて高い H_{cJ} を得られない恐れがあり、0.8質量%を超えると、不要なGaが存在することになり、主相比率が低下して B_r が低下する恐れがある。Gaの含有量は、好ましくは、0.2～0.8質量%である。高温においてより高い H_{cJ} を得ることができるからである。

[0027] MはCu、Al、Nb、Zrの少なくとも一種であり、0質量%であっても本発明の効果を奏することができるが、Cu、Al、Nb、Zrの合計で

2質量%以下含有することができる。Cu、Alを含有することにより、 H_c を向上させることができる。また、Nb、Zrを含有することにより、焼結時における結晶粒の異常粒成長を抑制することができる。Mは好ましくは、Cuを必ず含み、Cuを0.05～0.30質量%含有する。Cuを0.05～0.30質量%含有することにより、より H_c を向上させることができるからである。

[0028] 残部Tは、遷移金属の少なくとも一種であり、Feを必ず含み、Feの10%以下をCoで置換できる。Coを含有することにより、耐食性を向上させることができるが、Coの置換量がFeの10%を超えると高い B_r が得られない恐れがある。

さらに、本発明のR-T-B系焼結磁石素材は、ジジム合金(Nd-Pr)、電解鉄、フェロボロンなどに通常含有される不可避免の不純物としてCr、Mn、Si、La、Ce、Sm、Ca、Mgなどを含有することができる。さらに、製造工程中の不可避免の不純物として、O(酸素)、N(窒素)、C(炭素)などを例示できる。また少量のTi、V、Ni、Mo、Hf、Ta、Wなどを含有してもよい。

[0029] [RH拡散工程]

重希土類元素RH(Dy及び／又はTb)を含むRH拡散源と、本発明のR-T-B系焼結磁石素材とを加熱し、R-T-B系焼結磁石素材に対して、Dy及び／又はTbを拡散させるRH拡散工程を行う。なお、R-T-B系焼結磁石素材は、研削等の機械加工をした後にRH拡散工程を行ってもよい。

RH拡散工程は、Dy及び／又はTbをR-T-B系焼結磁石素材の表面から拡散し、 $R_2T_{14}B$ 型結晶構造を有する化合物からなる結晶粒の外殻部にDy及び／又はTbを濃化できる既知の方法を用いてよい。既知の方法として例えば、下記に詳述する参考文献1～3に記載される方法を例示する。

[0030] (1) 参考文献1：WO2007/102391号公報に記載の方法。

参考文献1に記載の方法は、R-T-B系焼結磁石素材と、DyおよびT

bの少なくとも一方を含有するR H拡散源とをNb製の網等を介して離間して配置し、R-T-B系焼結磁石素材とR H拡散源とを所定温度に加熱することにより、前記R H拡散源からDyおよびTbの少なくとも一方をR-T-B系焼結磁石素材の表面に供給しつつ、内部に拡散させる方法である。R-T-B系焼結磁石素材の加熱温度とR H拡散源の加熱温度は実質的に同じである。

[0031] 参考文献1に記載の方法を用いる場合、R H拡散源は、例えば、Dyメタル、DyFe合金、Tbメタル、TbFe合金などから選択される1つ以上である。R H拡散源の形状は、例えば、板状、球状など任意であり、大きさも特に限定されない。

R-T-B系焼結磁石素材およびR H拡散源を加熱する温度は、それぞれ、850℃以上1000℃以下が好ましい。また、処理容器内の雰囲気ガスの圧力は、 10^{-5} Pa以上500 Pa以下が好ましい。なお、参考文献1における「雰囲気ガス」とは、真空又は不活性ガスを含むものとする。また、「不活性ガス」とは、例えば、アルゴン(Ar)などの希ガスであるが、焼結体、重希土類元素供給源と化学的に反応しないガス(例えば、窒素ガス)は、「不活性ガス」に含まれ得る。

[0032] (2) 参考文献2: WO2011/007758号公報に記載の方法。

参考文献2に記載の方法は、R-T-B系焼結磁石素材とR H拡散源とを相対的に移動可能かつ近接または接触可能に処理容器内に挿入し、R-T-B系焼結磁石素材とR H拡散源とを処理容器内にて連続的または断続的に移動させながら、R-T-B系焼結磁石素材およびR H拡散源を加熱することにより、R H拡散源からDyおよびTbの少なくとも一方をR-T-B系焼結磁石素材に拡散する方法である。R-T-B系焼結磁石素材の加熱温度とR H拡散源の加熱温度は実質的に同じである。

[0033] 参考文献2に記載された方法を用いる場合、R H拡散源は、DyおよびTbの少なくとも一方を含む合金であることが好ましい。例えば、DyFe合金、TbFe合金などである。R H拡散源の形状は、球状、円柱状などの表

面に曲面が形成されている形状が好ましい。R H 拡散源は、粒子状であってもよいが、粒径が $200\text{ }\mu\text{m}$ 以上であることが好ましい。粒径が $200\text{ }\mu\text{m}$ 未満であると、R-T-B 系焼結磁石素材との溶着が生じやすい傾向があるためである。さらに、R H 拡散源と R-T-B 系焼結磁石素材に加え、攪拌補助部材を処理容器内へ装入することが好ましい。攪拌補助部材は R H 拡散源と R-T-B 系焼結磁石素材との接触を促進し、また攪拌補助部材に一旦付着した重希土類元素 R H を R-T-B 系焼結磁石素材へ間接的に供給する役割をする。さらに、攪拌補助部材は、処理容器内において、R-T-B 系焼結磁石素材同士の接触による欠けを防ぐ役割もある。攪拌補助部材は、直径数百 μm から数十 mm の球状、円柱状などが挙げられる。攪拌補助部材は、R H 拡散工程中に R-T-B 系焼結磁石素材および R H 拡散源と接触しても反応しにくい材料から形成されることが好ましい。攪拌補助部材としてはジルコニア、窒化ケイ素、炭化ケイ素並びに窒化硼素、又は、これらの混合物のセラミックスから好適に形成され得る。

[0034] R-T-B 系焼結磁石素材と R H 拡散源を加熱する温度は、 500°C 以上 850°C 以下が好ましい。また、処理容器内の雰囲気ガスの圧力は、大気圧以下で実施でき、 100 kPa 以下で行うのが好ましく、例えば 10^{-3} Pa 以上 10^3 Pa 以下の範囲内に設定することができる。

[0035] (3) 参考文献 3 : WO 2006 / 043348 号公報に記載の方法。

参考文献 3 に記載の方法は、R H 拡散源を R-T-B 系焼結磁石素材の表面に存在させた状態で焼結温度よりも低い温度で加熱することで、前記 R H 拡散源から D y および T b の少なくとも一方を R-T-B 系焼結磁石素材に拡散させる方法である。

[0036] 参考文献 3 に記載された方法を用いる場合、R H 拡散源は、R の酸化物、フッ化物、酸フッ化物などが好ましい。R H 拡散源は、粒子状であることが好ましく、その平均粒径は、 $100\text{ }\mu\text{m}$ 以下が好ましい。

R H 拡散源を R-T-B 系焼結磁石素材の表面に存在させる方法としては、例えば、粒子状の R H 拡散源をそのまま R-T-B 系焼結磁石素材の表面

に吹き付ける方法、R H拡散源を溶媒に溶解した溶液をR-T-B系焼結磁石素材の表面に塗布する方法、R H拡散源を分散媒に分散させたスラリーをR-T-B系焼結磁石素材の表面に塗布する方法等があげられる。スラリーに用いる分散媒としては、例えばアルコール、アルデヒド、エタノール、ケトン等が挙げられる。

[0037] R-T-B系焼結磁石素材とR H拡散源を加熱する温度は、焼結温度以下であり、具体的には、600℃以上1000℃以下が好ましい。焼結温度より高い温度であると、R-T-B系焼結磁石素材の組織が変質し、高い磁気特性が得られない場合又はR-T-B系焼結磁石素材が熱変形を引き起こす場合があるため、1000℃以下が好ましい。加熱する温度の下限は適宜選定され得るが、温度が低すぎると処理時間が長くなり、量産性が悪化する。そのため、600℃以上が好ましい。また、処理容器内の雰囲気ガスの圧力は、大気圧以下であることが好ましい。

[0038] [高温熱処理工程]

R H拡散工程後のR-T-B系焼結磁石に対して、730℃以上1020℃以下の温度に加熱後、5℃/分以上の冷却速度で300℃まで冷却を行う。本発明においては、この熱処理を高温熱処理工程という。本発明の組成を有するR-T-B系焼結磁石素材に対して上述したR H拡散工程を行い、更にR H拡散工程後のR-T-B系焼結磁石に対して高温熱処理工程と後述する低温熱処理工程の両方を行うことにより、温度係数を改善し、高温において高い H_c を得ることができる。

[0039] 高温熱処理工程の温度が730℃未満であると、温度係数が改善されず、高温において高い H_c を得ることができない恐れがあり、1020℃を超えると、粒成長が起こり H_c が低下する恐れがある。加熱時間は、5分以上500分以下が好ましい。さらに、本発明の高温熱処理工程は、730℃以上1020℃以下の温度に加熱後、5℃/分以上の冷却速度で300℃まで冷却する。冷却速度が5℃/分未満であると、温度係数が改善されず、高温において高い H_c を得ることができない。更に、後述する低温熱処理工程の処

理温度よりも十分に低い温度である300℃まで冷却しなければ、温度係数が改善されず、高温において高い H_c を得ることができない。冷却速度は5℃/分以上であればよく、冷却速度が変動しても構わない。例えば、冷却開始直後は40℃/分程度の冷却速度で300℃に近づくにしたがって35℃/分や30℃/分などの冷却速度に変化してもよい。また、好ましくは、前記高温熱処理工程の冷却速度は15℃/分以上で300℃まで冷却する。さらに優れた温度係数を得ることができるからである。

[0040] [低温熱処理工程]

高温熱処理工程後のR-T-B系焼結磁石に対し、440℃以上550℃以下の温度に加熱する。本発明においては、この熱処理を低温熱処理工程という。低温熱処理工程の温度が440℃未満の場合はR-T-Ga相が生成されず、高い H_c を得ることができない恐れがあり、550℃を超えると、高温において高い H_c を得ることができない恐れがある。低温熱処理工程の温度は、好ましくは480℃以上550℃以下である。加熱時間は、5分以上500分以下が好ましい。また、440℃以上550℃以下に加熱後の冷却速度は特に問わない。

[0041] 上述したRH拡散工程、高温熱処理工程、低温熱処理工程は、別々に行ってもよいし、連続して行ってもよい。例えば、RH拡散工程を行った後、続けて高温熱処理工程を行ってもよい。さらに高温熱処理工程後300℃まで冷却されたR-T-B系焼結磁石に対し440℃以上550℃以下まで加熱し、続けて低温熱処理工程を行っても本発明の効果を奏することができる。

[0042] 得られたR-T-B系焼結磁石に磁石寸法の調整のため、研削などの機械加工を施してもよい。その場合、高温熱処理工程及び低温熱処理工程は機械加工前でも機械加工後でもよい。さらに、得られた焼結磁石に、表面処理を施してもよい。表面処理は、既知の表面処理で良く、例えばAl蒸着や電気Niめっきや樹脂塗装などの表面処理を行うことができる。

実施例

[0043] 本発明を実験例によりさらに詳細に説明するが、本発明はそれらに限定さ

れるものではない。

[0044] <実験例 1>

ジジム合金、Ndメタル、Prメタル、フェロボロン合金、電解Co、Alメタル、Cuメタル、Gaメタル、フェロジルコニウム合金および電解鉄を用いて（メタルはいずれも純度99%以上）、表1の組成となるように配合し、それらの原料を溶解してストリップキャスト法により鑄造し、厚み0.2～0.4mmのフレーク状の原料合金を得た。得られたフレーク状の原料合金を水素粉碎した後、550℃まで真空中で加熱、冷却する脱水素処理を施し、粗粉碎粉を得た。次に、得られた粗粉碎粉に、潤滑剤としてステアリン酸亜鉛を粗粉碎粉100質量%に対して0.04質量%添加、混合した後、ジェットミル装置を用いて、窒素気流中で乾式粉碎し、粒径D50が4μmの微粉碎粉（合金粉末）を得た。なお、粒径D50は、気流分散式によるレーザー回折法で得られた体積基準メジアン径である。

[0045] 前記合金粉末に、潤滑剤としてステアリン酸亜鉛を合金粉末100質量%に対して0.05質量%添加、混合した後、磁界中で成形し、成形体を得た。成形装置は、磁界印加方向と加圧方向とが直交する、いわゆる直角磁界成形装置（横磁界成形装置）を用いた。得られた成形体を、組成に応じて真空中で1070℃～1090℃で4時間保持して焼結し、R-T-B系焼結磁石素材を得た。R-T-B系焼結磁石素材の密度は7.5Mg/m³以上であった。得られたR-T-B系焼結磁石素材の成分の分析結果を表1に示す。なお、表1における各成分は、高周波誘導結合プラズマ発光分光分析法（ICP-OES）を使用して測定した。また、O（酸素量）は、ガス融解－赤外線吸収法、N（窒素量）は、ガス融解－熱伝導法、C（炭素量）は、燃焼－赤外線吸収法、によるガス分析装置を使用して測定した。表1に示す様に、試料No. 1～3、4～6、7～9は、それぞれ、B量が異なる以外はほぼ同じ組成である。

[0046]

[表1]

No.	R-T-B系焼結磁石素材の分析結果 (質量%)													
	Nd	Pr	B	Co	Al	Cu	Ga	Nb	Zr	Fe	O	N	C	
1	22.5	7.6	0.88	0.9	0.20	0.20	0.50	0.00	0.10	bal.	0.07	0.03	0.09	本発明
2	22.5	7.4	0.90	0.9	0.20	0.20	0.50	0.00	0.10	bal.	0.09	0.04	0.08	本発明
3	22.6	7.5	0.96	0.9	0.20	0.20	0.50	0.00	0.10	bal.	0.09	0.03	0.09	比較例
4	24.0	8.0	0.85	0.9	0.20	0.20	0.50	0.00	0.10	bal.	0.10	0.04	0.09	本発明
5	23.9	8.0	0.87	0.9	0.20	0.20	0.50	0.00	0.10	bal.	0.09	0.04	0.08	本発明
6	24.0	8.2	0.92	0.9	0.20	0.20	0.50	0.00	0.10	bal.	0.11	0.04	0.09	比較例
7	25.3	8.5	0.83	0.9	0.20	0.20	0.50	0.00	0.10	bal.	0.14	0.03	0.09	本発明
8	25.6	8.4	0.85	0.9	0.20	0.20	0.50	0.00	0.10	bal.	0.11	0.04	0.10	本発明
9	25.5	8.5	0.93	0.9	0.20	0.20	0.50	0.00	0.10	bal.	0.10	0.04	0.08	比較例
10	22.5	7.0	0.89	0.9	0.20	0.20	0.50	0.00	0.10	bal.	0.07	0.03	0.08	本発明
11	26.0	9.0	0.80	0.9	0.20	0.20	0.50	0.00	0.10	bal.	0.12	0.05	0.09	本発明
12	23.9	7.9	0.87	0.9	0.20	0.20	0.50	0.00	0.00	bal.	0.10	0.04	0.09	本発明
13	24.0	8.1	0.87	0.9	0.20	0.30	0.50	0.00	0.10	bal.	0.09	0.04	0.08	本発明
14	23.8	7.9	0.87	0.9	0.20	0.05	0.50	0.00	0.10	bal.	0.10	0.04	0.09	本発明
15	23.9	8.0	0.87	0.9	0.20	0.20	0.80	0.00	0.10	bal.	0.10	0.04	0.09	本発明
16	24.0	8.0	0.87	0.9	0.20	0.20	0.10	0.00	0.10	bal.	0.08	0.04	0.09	本発明
17	24.2	8.0	0.87	0.9	0.20	0.20	0.20	0.00	0.10	bal.	0.10	0.04	0.07	本発明

[0047] 次に得られたR-T-B系焼結磁石素材に対しRH拡散工程を行った。

RH拡散源として、Dyを60質量%含む複数個のDyFe合金を用意した。前記DyFe合金は、1.5mm～2.5mmであった。また、攪拌補助部材として、直径5mmのジルコニアの球を複数個用意した。

[0048] 得られたR-T-B系焼結磁石素材とRH拡散源と攪拌補助部材とを処理容器内へ装入し、処理室内を真空排気した後Arガスを導入した。そして処理室内を加熱すると共に回転させ、前記RH拡散工程を行った。処理室は、毎秒0.03mの周速度で回転させ、処理容器内の温度を900℃に加熱して4時間保持した。前記RH拡散工程により、DyをR-T-B系焼結磁石素材に0.4質量%導入した。

[0049] RH拡散工程後のR-T-B系焼結磁石に対し高温熱処理工程を行った。高温熱処理工程は、R-T-B系焼結磁石を800℃に加熱し2時間保持した後R-T-B系焼結磁石を室温まで冷却した。当該冷却は、炉内にアルゴンガスを導入することにより、保持した温度(800℃)から300℃までの平均冷却速度を15℃/分の冷却速度で行い、300℃未満から室温までの平均冷却速度を2℃/分の冷却速度で行った。なお、各平均冷却速度(15℃/分及び2℃/分)における冷却速度ばらつき(冷却速度の最高値と最低値の差)は、いずれの試料も2℃/分以内であった。次いで高温熱処理工程後のR-T-B系焼結磁石に対し、低温熱処理工程を行った。低温熱処理

工程は、R－T－B系焼結磁石を500℃に加熱し2時間保持した後室温まで20℃／分の冷却速度で冷却した。なお、高温熱処理工程及び低温熱処理工程の加熱温度及び冷却速度は、R－T－B系焼結磁石に熱電対を取り付けて測定した。

[0050] 得られたR－T－B系焼結磁石の磁気特性測定結果を表2に示す。表2における「 H_{cJ} 23℃」は、室温（23℃）における H_{cJ} の値であり、「 B_r 140℃」は140℃における B_r の値であり、「 H_{cJ} 140℃」は140℃における H_{cJ} の値である。これら B_r 、 H_{cJ} の値は、低温熱処理工程後のR－T－B系焼結磁石に機械加工を施し、サンプルを7mm×7mm×7mmに加工し、BHトレーサにより測定した。また、「 ΔH_{cJ} 」は、「 H_{cJ} 23℃」の H_{cJ} の値から「 H_{cJ} 140℃」の H_{cJ} の値を引いた値であり、この値が小さいほど高温において H_{cJ} の低下が少ないことを示す。さらに、温度係数（ β ：23℃～140℃）を以下のようにして求めた。

$$\text{温度係数 } \beta = (140^\circ\text{Cの } H_{cJ} - 23^\circ\text{Cの } H_{cJ}) / 23^\circ\text{Cの } H_{cJ} / 117 \times 100\%$$

温度係数の絶対値が小さいほど温度係数が改善されていることを示している。

[0051]

[表2]

No.	磁気特性			温度係数		備考
	H_{cJ} 23°C	B_r 140°C	H_{cJ} 140°C	ΔH_{cJ}	$\beta : 23-140^\circ\text{C}$	
	(kA/m)	(T)	(kA/m)	(kA/m)	%/°C	
1	1503	1.16	601	902	-0.51	本発明
2	1641	1.17	601	1040	-0.54	本発明
3	1725	1.20	579	1146	-0.57	比較例
4	1577	1.10	680	897	-0.49	本発明
5	1713	1.12	668	1045	-0.52	本発明
6	1821	1.13	635	1186	-0.56	比較例
7	1788	1.06	696	1092	-0.52	本発明
8	1805	1.08	690	1115	-0.53	本発明
9	1795	1.12	625	1170	-0.56	比較例
10	1625	1.17	595	1030	-0.54	本発明
11	1875	1.03	700	1175	-0.54	本発明
12	1700	1.16	660	1040	-0.52	本発明
13	1712	1.16	671	1041	-0.52	本発明
14	1695	1.16	660	1035	-0.52	本発明
15	1720	1.15	675	1045	-0.52	本発明
16	1652	1.16	620	1032	-0.53	本発明
17	1702	1.16	662	1040	-0.52	本発明

[0052] 表2に示すように、本発明の組成範囲及び製造方法で作製した試料（No. 1、2、4、5、7、8、10～17）は、 H_{cJ} の温度係数に優れ、高温において H_{cJ} の低下を少なく、かつ、高い H_{cJ} を得ることができる。例えば、試料No. 1～3は、B量以外はほぼ同じ組成であるが、本発明の試料No. 1、2は、比較例の試料No. 3（B量が本発明の範囲外）と比べて140°Cにおいて高い H_{cJ} が得られている。さらに、 ΔH_{cJ} および温度係数は、本発明の試料No. 1、2の方が比較例の試料No. 3よりも値が小さい（温度係数については絶対値）。試料No. 4～6および7～9も同様である。また、本発明の試料No. 10～17は、ほぼ同じ組成の比較例は無いが、いずれも温度係数の絶対値が0.54%/°C以下（0.54%/°C～0.52%/°C）であり、表2における比較例試料No. 3、6、9（0.57%/°C～0.56%/°C）と比べて温度係数の絶対値が小さい。

また、表2に示すように、Bの範囲は、0.82～0.88質量%（試料No. 2、10、11以外の本発明）が好ましく、より優れた温度係数（-0.53%/°C～-0.49%/°C）を得ることができる。また、Ga以外はほぼ同じ組成である試料No. 12、15～17に示すように、Gaの範

囲は、0.2～0.8質量%（試料No. 12、15、17）が好ましく、高温（140℃）においてより高い H_{cJ} が得られている。

[0053] <実験例2>

ジウム合金、Ndメタル、Prメタル、フェロボロン合金、電解Co、Alメタル、Cuメタル、Gaメタル、フェロジルコニウム合金および電解鉄を用いて（メタルはいずれも純度99%以上）、実験例1の試料No. 5と同じ組成となるように配合し、実験例1と同じ方法でR-T-B系焼結磁石素材を得た。R-T-B系焼結磁石素材の密度は 7.5 Mg/m^3 以上であった。また、得られたR-T-B系焼結磁石素材の成分、ガス分析結果は、実験例1の試料No. 5と同等であった。さらに、得られたR-T-B系焼結磁石素材に対し実験例1と同じ方法でRH拡散工程を行った。

[0054] RH拡散工程後のR-T-B系焼結磁石に対し、表3に示す条件で高温熱処理工程を行い、さらに高温熱処理工程後のR-T-B系焼結磁石に対し、表3に示す条件で低温熱処理工程を行った。表3における高温熱処理工程および低温熱処理工程の温度（℃）は、R-T-B系焼結磁石の加熱温度であり、保持時間（Hr）は、前記加熱温度の保持時間である。冷却速度（℃/分）は、前記保持時間経過後にR-T-B系焼結磁石を保持した温度から300℃までの平均冷却速度を示している。300℃未満から室温までの高温熱処理工程および低温熱処理工程の冷却速度は、いずれの試料も7℃/分で冷却している。なお、平均冷却速度（保持した温度から300℃まで、および、300℃未満から室温まで）における冷却速度ばらつき（冷却速度の最高値と最低値の差）は、いずれの試料も2℃/分以内であった。また、高温熱処理工程及び低温熱処理工程の加熱温度および冷却速度は、R-T-B系焼結磁石に熱電対を取り付けて測定した。低温熱処理工程後のR-T-B系焼結磁石に機械加工を施し、実験例1と同様の方法で、「 H_{cJ} 23℃」、「 B_r 140℃」、「 H_{cJ} 140℃」を測定し、実験例1と同様に「 ΔH_{cJ} 」および温度係数を求めた。測定結果を表4に示す。

[0055]

[表3]

No.	高温熱処理			低温熱処理			
	温度 (°C)	保持時間 (Hr)	冷却速度 (°C/min)	温度 (°C)	保持時間 (Hr)	冷却速度 (°C/min)	
20	800	4	15	500	2	22	本発明
21	1000	4	15	500	2	22	本発明
22	750	4	15	500	2	22	本発明
23	900	4	15	500	2	22	本発明
24	850	4	85	500	2	20	本発明
25	850	4	5	500	2	22	本発明
26	850	4	20	500	2	22	本発明
27	850	4	43	500	2	21	本発明
28	850	4	2	500	2	22	比較例
29	850	4	15	540	2	22	本発明
30	850	4	15	450	2	21	本発明
31	850	4	15	520	2	22	本発明
32	850	4	15	400	2	23	比較例
33	700	4	15	500	2	22	比較例

[0056] [表4]

No.	磁気特性			ΔH_{cJ} (kA/m)	温度係数	
	H_{cJ} 23℃	B_r 140℃	H_{cJ} 140℃		$\beta : 23-140^\circ\text{C}$	
	(kA/m)	(T)	(kA/m)		%/℃	
20	1713	1.16	668	1045	-0.52	本発明
21	1708	1.16	670	1038	-0.52	本発明
22	1695	1.16	662	1033	-0.52	本発明
23	1713	1.16	670	1043	-0.52	本発明
24	1715	1.16	675	1040	-0.52	本発明
25	1685	1.16	630	1055	-0.54	本発明
26	1708	1.16	668	1040	-0.52	本発明
27	1710	1.16	668	1042	-0.52	本発明
28	1660	1.15	590	1070	-0.55	比較例
29	1693	1.16	660	1033	-0.52	本発明
30	1700	1.16	655	1045	-0.53	本発明
31	1705	1.16	665	1040	-0.52	本発明
32	1637	1.17	588	1049	-0.55	比較例
33	1642	1.16	592	1050	-0.55	比較例

[0057] 表4に示すように、R-T-B系焼結磁石素材を730°C以上1020°C以下の温度に加熱後、5°C/分以上で300°Cまで冷却する高温熱処理工程を行い、高温熱処理工程後のR-T-B系焼結磁石素材を440°C以上550°C以下の温度に加熱する低温熱処理工程を行った実施例（表4中の本発明）は、いずれも比較例と比べて、140°Cにおいて高い H_{cJ} が得られており、さらに、温度係数の絶対値が小さい。これに対し、高温熱処理工程の温度

が本発明の範囲外である試料No. 33や高温熱処理工程後の冷却速度が本発明の範囲外である試料No. 28や低温熱処理工程の温度が本発明の範囲外である試料No. 32は、本発明と比べて H_{cJ} の温度係数が絶対値が大きく、さらに高温において高い H_{cJ} を得ることができない。また、表4に示すように、高温熱処理工程における冷却速度は、 $15^{\circ}\text{C}/\text{分}$ 以上（試料No. 25以外の本発明）が好ましく、さらに優れた温度係数（ $-0.53\%/^{\circ}\text{C}$ ～ $-0.52\%/^{\circ}\text{C}$ ）を得ることができる。

[0058] <実験例3>

ジウム合金、Ndメタル、Prメタル、フェロボロン合金、電解Co、Alメタル、Cuメタル、Gaメタル、フェロジルコニウム合金および電解鉄を用いて（メタルはいずれも純度99%以上）、表5の組成となるように配合すること以外は、実験例1と同じ方法でR-T-B系焼結磁石素材を得た。R-T-B系焼結磁石素材の密度は $7.5\text{Mg}/\text{m}^3$ 以上であった。得られたR-T-B系焼結磁石素材の成分の分析結果を表5に示す。なお、表5における各成分は、実験例1と同じ方法で測定した。

[0059] [表5]

No.	R-T-B系焼結磁石素材の分析結果（質量%）													
	Nd	Pr	B	Co	Al	Cu	Ga	Nb	Zr	Fe	O	N	C	
35	22.7	7.5	0.88	0.9	0.20	0.20	0.50	0.00	0.10	bal.	0.08	0.03	0.08	本発明
36	24.2	7.9	0.85	0.9	0.20	0.20	0.50	0.00	0.10	bal.	0.09	0.03	0.09	本発明
37	25.1	8.5	0.83	0.9	0.20	0.20	0.50	0.00	0.10	bal.	0.11	0.03	0.08	本発明

[0060] 次に得られたR-T-B系焼結磁石素材に対しRH拡散工程を行った。

RH拡散源として、 DyFe_2 の粉末を質量分率50%でアルコールと混合した混濁液を用意した。前記混濁液に超音波を印加しながらR-T-B系焼結磁石素材を40秒間浸した。なお、 DyFe_2 の粉末の平均粒子径は $30\mu\text{m}$ であった。引き上げたR-T-B系焼結磁石素材を真空デシケータに置き、室温にてロータリーポンプによる排気雰囲気下で30分間乾燥させた。

[0061] DyFe_2 により覆われた（ DyFe_2 を塗布した）R-T-B系焼結磁石素材に対し、Ar雰囲気中で 810°C に加熱し8時間保持してRH拡散工程を行った。前記RH拡散工程により、DyをR-T-B系焼結磁石素材に0

、4質量％導入した。

[0062] R H拡散工程後のR－T－B系焼結磁石に対し高温熱処理工程を行った。高温熱処理工程は、R－T－B系焼結磁石を800℃に加熱し4時間保持した後R－T－B系焼結磁石を室温まで冷却した。当該冷却は、炉内にアルゴンガスを導入することにより、保持した温度（800℃）から300℃までの平均冷却速度を15℃／分の冷却速度で行い、300℃未満から室温までの平均冷却速度を2℃／分の冷却速度で行った。なお、各平均冷却速度（15℃／分及び2℃／分）における冷却速度ばらつき（冷却速度の最高値と最低値の差）は、いずれの試料も2℃／分以内であった。次いで高温熱処理工程後のR－T－B系焼結磁石に対し、低温熱処理工程を行った。低温熱処理工程は、R－T－B系焼結磁石を500℃に加熱し2時間保持した後室温まで20℃／分の冷却速度で冷却した。なお、高温熱処理工程および低温熱処理工程の加熱温度及び冷却速度は、R－T－B系焼結磁石に熱電対を取り付けて測定した。低温熱処理工程後のR－T－B系焼結磁石に機械加工を施し、実験例1と同様の方法で、「 H_{cJ} 23℃」、「 B_r 140℃」、「 H_{cJ} 140℃」を測定し、実験例1と同様に「 ΔH_{cJ} 」および温度係数を求めた。測定結果を表6に示す。

[0063] [表6]

No.	磁気特性				温度係数	
	H_{cJ} 23℃	B_r 140℃	H_{cJ} 140℃	ΔH_{cJ}	$\beta : 23-140^\circ\text{C}$	
	(kA/m)	(T)	(kA/m)	(kA/m)	%/℃	
35	1501	1.16	602	899	-0.51	本発明
36	1580	1.11	685	895	-0.48	本発明
37	1780	1.07	687	1093	-0.52	本発明

[0064] 表6に示す様に、本発明の実施例である試料No. 35～37は、それぞれほぼ同じ組成である試料No. 1、4、7と比べて、「 H_{cJ} 140℃」、「 ΔH_{cJ} 」および温度係数が同等であり、 H_{cJ} の温度係数に優れ、高温において H_{cJ} の低下を少なく、かつ、高い H_{cJ} が得られている。本実施例のようにR－T－B系焼結磁石素材にRH拡散源を塗布するRH拡散工程を行っても本発明の効果を奏することができる。

請求の範囲

- [請求項1] R : 29.5 ~ 35.0 質量% (Rは希土類元素の少なくとも一種でありNdを必ず含む)、
- B : 0.80 ~ 0.90 質量%、
- Ga : 0.1 ~ 0.8 質量%、
- M : 0 ~ 2 質量% (MはCu、Al、Nb、Zrの少なくとも一種)
- 残部T (Tは遷移金属元素の少なくとも一種でありFeを必ず含み、Feの10%以下をCoで置換できる) 及び不可避免の不純物を含有するR-T-B系焼結磁石素材を準備する工程と、
- 重希土類元素RH (RHは、Dy及び／又はTb) を含むRH拡散源と、前記R-T-B系焼結磁石素材とを加熱し、前記RH拡散源から前記R-T-B系焼結磁石素材に重希土類元素RHを拡散させるRH拡散工程と、
- 前記RH拡散工程後のR-T-B系焼結磁石を730 ~ 1020℃の温度に加熱後、5℃/分以上で300℃まで冷却する高温熱処理工程と、
- 前記高温熱処理工程後のR-T-B系焼結磁石を440 ~ 550℃の温度に加熱する低温熱処理工程と、
- を含むR-T-B系焼結磁石の製造方法。
- [請求項2] Mは、Cuを必ず含み、Cu : 0.05 ~ 0.30 質量%である請求項1に記載のR-T-B系焼結磁石の製造方法。
- [請求項3] R : 30.0 ~ 34.0 質量%である請求項1または2に記載のR-T-B系焼結磁石の製造方法。
- [請求項4] B : 0.82 ~ 0.88 質量%である請求項1 ~ 3のいずれかに記載のR-T-B系焼結磁石の製造方法。
- [請求項5] Ga : 0.2 ~ 0.8 質量%である請求項1 ~ 4のいずれかに記載のR-T-B系焼結磁石の製造方法。

[請求項6] 前記高温熱処理工程は、前記 R H 拡散工程後の R - T - B 系焼結磁石を 730 ～ 1020℃ の温度に加熱後、15℃／分以上で 300℃ まで冷却する請求項 1 ～ 5 のいずれかに記載の R - T - B 系焼結磁石の製造方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/052262

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01F41/02(2006.01)i, B22F3/24(2006.01)i, C21D6/00(2006.01)i, C22C38/00(2006.01)i, H01F1/057(2006.01)i, H01F1/08(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

H01F41/02, B22F3/24, C21D6/00, C22C38/00, H01F1/057, H01F1/08

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2016
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2016	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2016

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2012/043061 A1 (Hitachi Metals, Ltd.), 05 April 2012 (05.04.2012), paragraphs [0022] to [0024], [0040], [0048] to [0055], [0065], [0068]; fig. 6 & US 2013/0181039 A1 paragraphs [0029] to [0039], [0058], [0059], [0070] to [0079], [0088]; table 4; fig. 6 & JP 2012-94813 A & CN 103140902 A	1-6
Y	JP 2014-027268 A (TDK Corp.), 06 February 2014 (06.02.2014), paragraphs [0007], [0051] to [0056] (Family: none)	1-6

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
04 April 2016 (04.04.16)

Date of mailing of the international search report
12 April 2016 (12.04.16)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/052262

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2007-329250 A (Ulvac, Inc.), 20 December 2007 (20.12.2007), paragraphs [0019], [0031], [0032], [0061] to [0071]; fig. 5, 6 (Family: none)	1-6
A	WO 2011/122638 A1 (TDK Corp.), 06 October 2011 (06.10.2011), paragraphs [0075] to [0082] & US 2013/0009503 A1 paragraphs [0090] to [0101] & JP 2011-211069 A & EP 2555208 A1 & CN 102473498 A	1-6

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. H01F41/02(2006.01)i, B22F3/24(2006.01)i, C21D6/00(2006.01)i, C22C38/00(2006.01)i,
H01F1/057(2006.01)i, H01F1/08(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. H01F41/02, B22F3/24, C21D6/00, C22C38/00, H01F1/057, H01F1/08

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2016年
日本国実用新案登録公報	1996-2016年
日本国登録実用新案公報	1994-2016年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	WO 2012/043061 A1（日立金属株式会社）2012.04.05, 段落0022-0024、0040、0048-0055、0065、0068、 図6 & US 2013/0181039 A1, 段落0029-0039、0058、0059、0070-0079、0088、表4、図6 & JP 2012-94813 A & CN 103140902 A	1-6
Y	JP 2014-027268 A（TDK株式会社）2014.02.06, 段落0007、0051-0056（ファミリーなし）	1-6

☑ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの	「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの	「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）	「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」 同一パテントファミリー文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	

国際調査を完了した日

04.04.2016

国際調査報告の発送日

12.04.2016

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（ISA/J P）

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

池田 安希子

5 D

4175

電話番号 03-3581-1101 内線 3551

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2007-329250 A (株式会社アルバック) 2007.12.20, 段落0019、0031、0032、0061-0071、図5、図6 (ファミリーなし)	1-6
A	WO 2011/122638 A1 (TDK株式会社) 2011.10.06, 段落0075-0082 & US 2013/0009503 A1, 段落0090-0101 & JP 2011-211069 A & EP 2555208 A1 & CN 102473498 A	1-6